

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 1 1 月 2 7 日
Date of Application:

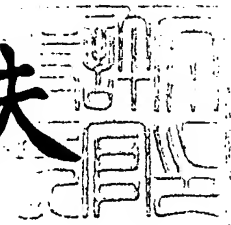
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 3 4 4 4 2 6
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 . 0 0 2 - 3 4 4 4 2 6]

出 願 人 株式会社水素エネルギー研究所
Applicant(s):

2 0 0 4 年 1 月 1 6 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 E02009

【提出日】 平成14年11月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 35/00

C01B 35/12

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県藤沢市辻堂太平台 2 - 1 - 4 8

【氏名】 須田 精二郎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都八王子市中野町 2 6 6 5 - 1 工学院大学八王子
学舎 株式会社水素エネルギー研究所 八王子研究所内

【氏名】 李 洲鵬

【発明者】

【住所又は居所】 東京都八王子市中野町 2 6 6 5 - 1 工学院大学八王子
学舎 株式会社水素エネルギー研究所 八王子研究所内

【氏名】 岩瀬 安慶

【発明者】

【住所又は居所】 東京都八王子市中野町 2 6 6 5 - 1 工学院大学八王子
学舎内

【氏名】 森ヶ崎 信人

【特許出願人】

【識別番号】 595155978

【氏名又は名称】 株式会社水素エネルギー研究所

【代理人】

【識別番号】 100091513

【弁理士】

【氏名又は名称】 井上 俊夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 034359

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 テトラヒドロホウ酸塩の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 原料であるホウ酸塩と、アルカリ土類金属と、を含む混合物を、水素雰囲気下において前記アルカリ土類金属の水素化物が安定して存在する反応平衡圧よりも低い圧力で加熱して反応させることを特徴とするテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【請求項 2】 前記アルカリ土類金属は、マグネシウムであることを特徴とする請求項 1 記載のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【請求項 3】 混合物は、水素を吸着するための水素化金属触媒を含むことを特徴とする請求項 1 又は 2 のいずれかに記載のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【請求項 4】 混合物が粉末状であることを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【請求項 5】 コークス炉ガスを水素源としたことを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【請求項 6】 テトラヒドロホウ酸塩が、水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4)、水素化ホウ素リチウム (LiBH_4) 又は水素化ホウ素カリウム (KBH_4) であることを特徴とする請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、例えばアルカリ土類金属のホウ酸塩を水素化してテトラヒドロホウ酸塩を製造する方法に関する。

【0002】

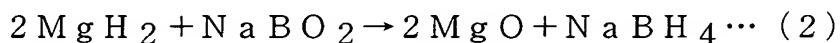
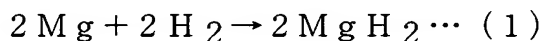
【従来の技術】

テトラヒドロホウ酸塩、例えば水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4) は還元剤あるいは水素化剤として広く用いられているが、近年これを水素発生剤あるいは

は燃料電池の燃料として用いることが検討されている。

【0003】

従来、ホウ酸塩を原料としてテトラヒドロホウ酸塩を製造する方法としては、例えばブリケット成型したホウ酸塩および、アルカリ金属又はアルカリ土類金属の混合物を水素圧下において所定の温度に加熱し、先行して生成するアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水素化物を反応前駆体として、ホウ酸塩を水素化せしめてテトラヒドロホウ酸塩を得る手法が知られている（例えば、特許文献1参照。）。この反応についてより詳しくは、例えば原料のホウ酸塩にメタホウ酸ナトリウム（ NaBO_2 ）、アルカリ金属又はアルカリ土類金属にマグネシウム（ Mg ）を用いた場合には、先ず反応式1に示すマグネシウムと水素との反応が先行し水素化マグネシウムが生成する。この反応が進行して、マグネシウムの粒子がある程度厚みをもった水素化マグネシウムの層で覆われると、この層を水素が通過できず反応式1の反応は実質進行しなくなり、次いで反応式2に示すように当該水素化マグネシウムとメタホウ酸ナトリウムとの反応が行われてテトラヒドロホウ酸塩である水素化ホウ酸ナトリウム（ NaBH_4 ）が生成する。



【0004】

【特許文献1】

特公昭33-10788号公報（第3-4頁）

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

上述の製造方法には、前記したように水素化マグネシウムの層の内部に例えば40%程度の未反応のマグネシウムが残ってしまい、そのためマグネシウムの利用率が低いといった問題がある。従って、前記反応式1による水素化マグネシウムの生成反応を促進させて、予めできるだけ多くの水素化マグネシウムを生成（水素化マグネシウムの厚い層を形成）させておかなければメタホウ酸ナトリウムと反応する水素化マグネシウムが不足して、結果として収率が低くなってしまう場合がある。しかしながら反応式1をより促進させるには、水素が水素化マグネ

シウム層を通過して、より内部に入り込まなければ新たに水素化マグネシウムを生成できず例えば500～550℃では10～20MPaの高い水素圧を要する。そのため加圧に要する動力が大きくなり、また加圧機器が大型化して製造コストが高くなる懸念がある。さらに内部まで水素化するためには長時間上記の加圧・加熱条件を維持する必要がある。一方、未反応分に見合う量のマグネシウムを予め原料に混合しておくこともできるが、マグネシウムの使用量が多くなるので運転コストが高くなってしまう。

【0006】

本発明はこのような事情の下になされたものであり、その目的は製造コストを低く抑えることのできるテトラヒドロホウ酸塩の製造方法を提供することにある。また他の目的は、温和な反応条件による収率の高いテトラヒドロホウ酸塩の製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法は、原料であるホウ酸塩と、アルカリ土類金属と、を含む混合物を、水素雰囲気下において前記アルカリ土類金属の水素化物の反応平衡圧よりも低い圧力で加熱して反応させることを特徴とする。

【0008】

本発明のテトラヒドロホウ酸塩の製造方法によれば、アルカリ土類金属の水素化物が安定して存在できる反応平衡圧よりも低い圧力でアルカリ土類金属表面に生成するプロタイド(H⁻)を利用する。そのためアルカリ土類金属の表面が酸化皮膜などの皮膜で覆われても反応率の低下が抑えられ、また予め反応前駆体であるアルカリ土類金属の水素化物を生成させておく必要がない。その結果、高い収率でテトラヒドロホウ酸塩を得ることができる。また反応中に金属マグネシウムの表面で次々とプロタイドが生成して未反応のアルカリ土類金属が少なくなるので、このアルカリ土類金属を高い利用率で使用することができ、結果として製造コストを低く抑えることができる。

【0009】

前記アルカリ土類金属は、例えばマグネシウムであってもよい。前記混合物は

、例えば水素を吸着するための金属触媒を含むようにしてもよい。また前記混合物は例えば粉末状であってもよい。更にコークス炉ガスを水素源としてもよい。更にまた、テトラヒドロホウ酸塩が、例えば水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4)、水素化ホウ素リチウム (LiBH_4) 又は水素化ホウ素カリウム (KBH_4) であってもよい。

【0010】

【発明の実施の形態】

本発明の実施の形態について説明する。先ず原料であるホウ酸塩について述べると、例えばメタホウ酸塩、四ホウ酸塩、五ホウ酸塩などのホウ酸塩が用いられる。メタホウ酸塩としては例えば NaBO_2 、 KBO_2 、 LiBO_2 、 $\text{Ca}(\text{BO}_2)_2$ 、 $\text{Mg}(\text{BO}_2)_2$ などが具体例として挙げられる。また四ホウ酸塩としては例えば $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 、 $\text{Na}_2\text{O} \cdot 2\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{K}_2\text{O} \cdot \text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 、 $\text{Mg}_3\text{B}_4\text{O}_9$ などが具体例として挙げられる。更に五ホウ酸塩としては例えば NaB_5O_8 、 $\text{Na}_2\text{O} \cdot 5\text{B}_2\text{O}_3$ 、 KB_5O_8 、 $\text{K}_2\text{O} \cdot 5\text{B}_2\text{O}_9$ 、 LiB_5O_8 などが具体例として挙げられる。また天然のホウ酸塩鉱物であってもよく、例えば $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_2\text{B}_6\text{O}_{11} \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CaNaB}_5\text{O}_9 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Mg}_7\text{Cl}_2\text{B}_{17}\text{O}_{30}$ などを原料とすることができる。またホウ酸塩は、平均粒径が例えば $500\mu\text{m}$ 、好ましくは $100\mu\text{m}$ 以下の粉末状にして用いることが反応率を向上するために好ましい。

【0011】

また原料のホウ酸塩と混合するアルカリ土類金属は、例えばカルシウム (Ca)、マグネシウム (Mg)、ストロンチウム (Sr) などを用いることができるが、空気中で化学反応を起こしにくく、更には粉末状にするのが簡単なマグネシウム、カルシウムを用いるのが好ましい。これらの金属は純度に係わりなく、例えば酸化マグネシウム (MgO) から再生したマグネシウム、水素化マグネシウム (MgH_2) などの不純物を含むマグネシウムであってもよい。更にこのアルカリ土類金属は、前記したホウ酸塩の粉末と十分に混合するために、平均粒径が例えば $500\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $200\mu\text{m}$ 以下の粉末状にして用いることが

反応率を向上するために好ましい。

【0012】

続いて本例の反応条件について説明するが、ここでは一例として原料にメタホウ酸ナトリウム (NaBO_2)、アルカリ土類金属にマグネシウム (Mg) を用いた例を説明する。メタホウ酸ナトリウムおよびマグネシウムは、特に前処理することなく反応に供しうるが、必要に応じて前処理として例えばアセトンなどの有機媒体中でボールミル等により攪拌・粉碎しながら例えば $100 \sim 450^\circ\text{C}$ の温度で真空処理することにより脱水および加熱乾燥させて、ホウ酸塩の結晶水を 1 以下、好ましくは無水物にすると共に、水分を充分に除去する。そして充分に混合および水分除去がなされた後、例えば管式反応器に充填される。なおマグネシウムの混合比率としては、反応に必要な理論モル量の 1～2 倍を使用すればよく、必ずしも過剰に存在させる必要はない。

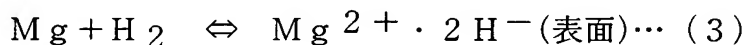
【0013】

ここで反応器内の混合物に対して水素ガスを供給し、前記混合物を水素ガスの雰囲気下において、例えば $250 \sim 700^\circ\text{C}$ で加熱する。反応温度が高すぎると生成した水素化ホウ酸ナトリウムが熱分解してしまうといった理由から反応温度は 700°C 以下に設定するのが好ましく、更に好ましくは $400 \sim 500^\circ\text{C}$ である。また反応圧力は、供給する水素圧により例えば「従来技術」に記載の反応式 1 により生成する水素化マグネシウムが安定して存在できる反応平衡圧よりも低い圧力、言い換えると水素化マグネシウムが安定して存在できない圧力に設定する。具体的には例えば 400°C では 1.9 MPa 以下、 600°C では 40 MPa 以下である。この場合、「従来技術」に記載の手法では反応温度を高くするとその分水素圧を高くする必要があるが、本例では例えば反応温度が $500 \sim 600^\circ\text{C}$ においても水素圧が例えば 3 MPa 以下でよく、加圧に要する動力などを少なくすることができるので有利である。

【0014】

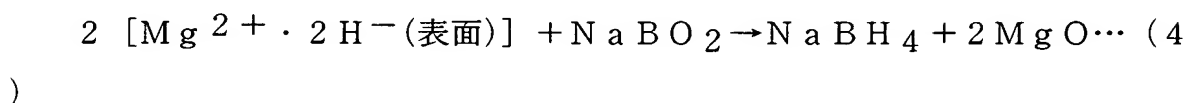
ここで前記した水素化マグネシウムが安定して存在できる反応平衡圧について簡単に述べておくと、図 1 に示すように、反応平衡圧 P ($\log P$) と温度 T ($1/T$) は概ね直線関係にあると考えられる。一例を挙げると、 500°C の平衡

圧力は 11 MPa であり、550℃の平衡圧は 21 MPa である。従って理論上は平衡圧線 Q よりも上の領域 A に反応条件を設定すると前記反応式 1 の反応が促進されて安定した水素化マグネシウムが生成され、平衡圧線 Q よりも下の領域 B に反応条件を設定すると反応式 3 の反応によりマグネシウムの表面にのみプロタイド (H⁻) あるいは -1 価をとる活性な水素種が生成する。しかしながら実際には、例えば不純物の影響や、例えば放熱により反応器内の温度がばらつくなどの種々の外乱を受けることから予め試験を行って実際の平衡圧線 Q を把握しておくのが好ましい。一方領域 C は生成した水素化ホウ素ナトリウムが分解する領域である。



【0015】

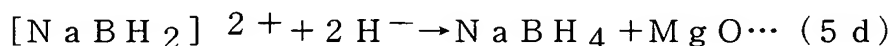
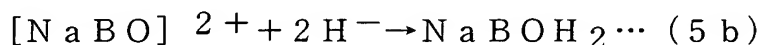
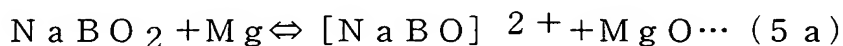
このような本例の反応条件においては、先ずマグネシウムと水素とが接触した際に安定した水素化マグネシウムが生成するには至らず、前記反応式 3 に示すようなマグネシウムの表面にプロタイドが生成する。続いてこのプロタイドとその近傍にあるメタホウ酸ナトリウム中の酸化物イオン (O²⁻) との交換反応が起こることにより、つまり反応式 4 の反応によりメタホウ酸ナトリウムが水素化して水素化ホウ素ナトリウムが生成する。



【0016】

ところで上述の反応 (反応式 3、反応式 4) が進行すると、マグネシウム粉末の表面が酸化マグネシウム (MgO) からなる酸化皮膜で覆われてくる。このとき水素ガス (水素分子) は水素圧により酸化皮膜の空隙を通して内部に侵入し、この酸化皮膜の内側にあるマグネシウムと反応してその表面にプロタイドが生成する。一方、マグネシウム粉末の表面 (酸化皮膜の表面) にメタホウ酸ナトリウムが接触すると、反応式 5a ~ 5d に示すような反応が進行すると考えられる。即ち、先ず 2 個の酸化物イオンを有するメタホウ酸ナトリウムと、1 個の酸化物イオンを有する酸化マグネシウムとの酸化物イオンの濃度差により、このメタホウ酸ナトリウム中の酸化物イオンが酸化皮膜側に向かって拡散移動をし、既にマ

マグネシウムと結合している酸化物イオンを更に内側に向かって押し込むといった、玉突き移動のごとき挙動を呈して順次既存の酸化物イオンを内部へ向かって押し込み、酸化皮膜層をマグネシウム粒子の内部に向けて形成させる。一方、マイナス 2 価の酸化物イオンがマグネシウム側に拡散移動することでメタホウ酸ナトリウムと、マグネシウム粉末との間には電気的なアンバランスが生じるので、電氣的に平衡な状態になるために前記酸化物イオンと入れ替わるようにして 2 個のプロタイドが外側に向かって移動し、このプロタイドがメタホウ酸ナトリウムの酸化物イオンが抜けた空間に入り込むようにして結合することにより、水素化ホウ素ナトリウムが生成する。従って反応式 5 a ~ 5 d の反応が進行することによりマグネシウムの酸化皮膜がより内部深くまで形成されていき、酸化物イオンの押し込み限界に達すると当該マグネシウムは反応に寄与しなくなる。



【0017】

しかる後、例えば予定とする反応時間が経過すると、加熱を停止し、水素雰囲気例えば窒素で置換した後、反応生成物を取り出して抽出工程が行われる。この抽出工程の一例を挙げると、先ず一般にカセイソーダなどのアルカリ水溶液により水素化ホウ素ナトリウムと未反応のメタホウ酸ナトリウムを抽出し、次いで再結晶法により水素化ホウ素ナトリウムを結晶化させることで水素化ホウ素ナトリウムの結晶体を得る。再結晶法に代えて、例えば無水のエチレンジアミン、液体アンモニアなどを用いる溶媒抽出法を用いるようにしてもよい。

【0018】

本発明の製造方法によれば、水素化マグネシウムが安定して存在できる反応平衡圧よりも低い圧力に反応条件を設定することにより、マグネシウムの表面でプロタイドが生成する。このプロタイドは前記酸化皮膜を拡散移動してくるメタホウ酸ナトリウムの酸化物イオンと入れ替わるようにして外側に向かって移動し、更に当該メタホウ酸ナトリウムの酸化物イオンが抜けた空間に入り込み水素化ホ

ウ素ナトリウムを生成する。このため反応前駆体であるアルカリ土類金属の水素化物を予め生成させておく必要がなく、またマグネシウムの表面が例えば酸化皮膜などの皮膜で覆われても反応率の低下が抑えられ、結果として高い収率で水素化ホウ素ナトリウムを得ることができる。なお発明者らは、後述する実施例から明らかなように1～3時間の反応によりメタホウ酸ナトリウムを転化して50%以上の収率を得たことを確認している。

【0019】

また上述の実施の形態によれば、前記したように酸化物イオンがいわば浸透するかのごとく酸化皮膜を拡散移動し、そのため電氣的にアンバランスな状態が生じることでプロタイドが移動してホウ酸塩と反応するので、未反応のマグネシウムがないか、あるいは極めて少なくなる。即ち、マグネシウムを高い利用率で反応に寄与させることができるので、結果として運転コストを低く抑えることができる。更に従来手法に比して反応圧力（水素圧）を低く設定しているため、加圧に要する動力を少なくでき、更には加圧装置の小型化ができるので、その分低コスト化を図ることができる点で有利である。

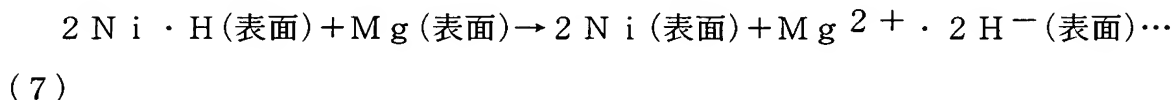
【0020】

なお、本例においてはマグネシウムを用いた例を説明したが、既述の別のアルカリ土類金属を用いた場合であっても、水素圧によりそのアルカリ土類金属の水素化物が安定して存在する反応平衡圧よりも低い圧力に設定することで本発明の作用・効果を得られることは言うまでもなく、どのような平衡圧線となるかは上述したように予め実験を行って把握するのが好ましい。その一例を挙げておくと、例えばカルシウムの場合には、1000℃において0.03MPa、1100℃において0.1MPaの概ね直線関係となる。

【0021】

本発明においては、より確実に高い収率を得るために原料の混合物に水素化触媒を添加してもよい。この水素化触媒としては水素を吸着・解離し得る金属であればよく、例えばNi、Co、Fe、Pt、Cu、Pd、Ru、Rhなどの金属が用いられ、特にNiが好ましい。また水素化触媒の添加量は、アルカリ土類金属に対して20重量%以下、一般に1～5重量%であればよい。このような構成

によれば、反応式 6 によりニッケルの表面に水素が化学的に吸着し、この吸着した水素とマグネシウムとが反応式 7 により反応してプロタイドが生成する。発明者らは、後述する実施例から明らかなように水素化触媒として金属 Ni を用いることにより 80% 以上の収率で水素化ホウ素ナトリウムを得ることができることを確認している。



【0022】

更に本発明においては、混合物に供給する水素は純水素に限られず、例えば一酸化炭素 (CO)、二酸化炭素 (CO₂) などの炭素酸化物、メタン (CH₄) などの炭素水素化物などを含む水素ガスを用いてもよい。このような水素ガスの一例としては例えば天然ガスの改質ガス、バイオガス、コークス炉ガスなどが具体例として挙げられる。特に概ねメタンを 30 体積%、一酸化炭素を 6 体積% を含むコークス炉の排ガスは、そのまま用いることにより、その熱を利用できると共に、含有する一酸化炭素およびメタンの成分がホウ酸塩の酸化物イオンに対して酸素受容体として作用するため水素化が促進されるので得策である。即ち、当該コークス炉ガスを使用することにより、一酸化炭素およびメタンの成分がホウ酸塩の酸化物イオンを受け取って二酸化炭素を形成するため、アルカリ金属又はアルカリ土類金属の表面に酸化皮膜が形成されるのを低減できる利点がある。なお水素は上記のものに限られず例えば水力発電などを利用して水電解あるいは食塩電解などで得られる水素であってもよい。

【0023】

更に本発明においては、原料のホウ酸塩は、例えば水素化ホウ酸ナトリウム (NaBH₄) などのテトラヒドロホウ酸塩から水素を放出させた後の、例えばメタホウ酸塩ナトリウム (NaBO₂) を分離して水素化ホウ酸ナトリウムに再生するために用いてもよい。このようなテトラヒドロホウ酸塩としては、例えば燃料電池の燃料として用いられるテトラヒドロホウ酸塩が具体例として挙げられる。

。

【0024】

【実施例】

続いて本発明の効果を確認するために行った実施例について説明する。

【0025】

(実施例1)

本例は、上述の実施の形態の効果を確認するために行った実施例である。粉末状のメタホウ酸ナトリウム 0.35 g、平均粒径 100 μ m のマグネシウム 0.51 g を十分に混合し、ステンレス製の管状反応器に充填した。次いで反応器に水素圧力 2.3 MPa で水素ガスを供給した後、550℃ に昇温した。500℃ を越えたあたりから反応が急速に進行した。反応開始から 2 時間経過後に反応生成物を反応器から取り出し、水素化ホウ素ナトリウムを抽出した。ヨウ素滴定および加水分解による水素発生法による分析の結果、収率は 67% であった。なお収率は、 $\left(\text{実際の生成モル量} / \text{理論反応モル量} \right) \times 100$ により求めた。即ち、高収率で水素化ホウ素ナトリウムが得られることが確認された。

【0026】

(実施例2)

本例は、水素化触媒であるニッケルを加えたことを除いて実施例1と同じ処理を行った実施例2である。ニッケルは平均粒径 5 μ m のものを 0.025 g 混合した。その結果、収率は 87% であった。即ち、水素化触媒を加えることにより、高い収率が得られることが確認された。

【0027】

(比較例1)

本例は、400℃ に昇温したことを除いて実施例と同じ比較例である。つまり水素化マグネシウムが安定して存在できる圧力に設定してある（400℃ の平衡圧は 1.9 MPa である）。その結果、この例での収率は 4% と低いものであった。即ち、本発明のように水素化マグネシウムが安定して存在する平衡圧よりも低くとも高い収率が得られることが確認された。このように高い収率が得られる理由としては、水素圧が低いことで水素化マグネシウム層の形成が盛んに行われなかった為に、反応に寄与するマグネシウムが水素化マグネシウム層が形成され

た場合と比較して多量にあり、全体反応が進行したものと推察する。

【0028】

【発明の効果】

以上のように本発明によれば、アルカリ土類金属の水素化物が安定して存在できる反応平衡圧よりも低い圧力に反応条件を設定することにより、アルカリ土類金属の表面のプロタイドを利用してテトラヒドロホウ酸塩を生成できるために、予め反応前駆体を生成させなくとも高い収率でテトラヒドロホウ酸塩を得ることができる。またホウ酸塩の酸化物イオンが浸透していくかのごとく酸化皮膜が形成されるので、未反応のアルカリ土類金属を少なくでき、結果として製造コストの低コスト化を図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

マグネシウムおよび水素と、水素化マグネシウムの平衡圧線を示す説明図である。

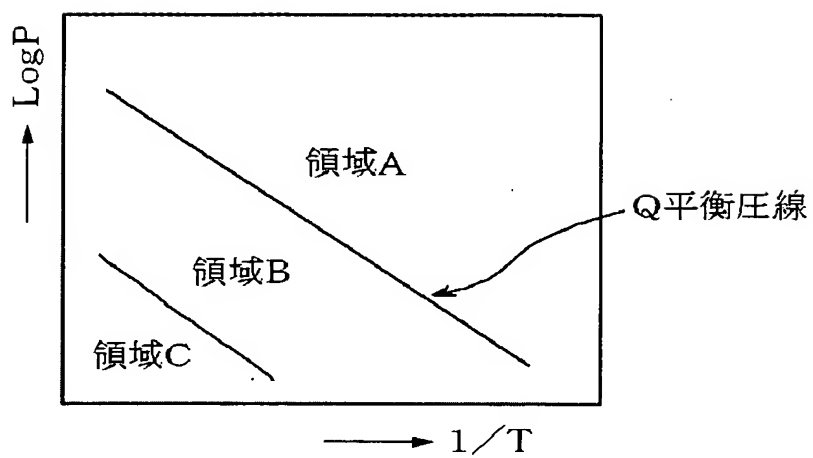
【符号の説明】

- A 水素化マグネシウムが安定して存在する反応領域
- B マグネシウムの表面にのみプロタイドの生成する領域
- C 水素化ホウ素ナトリウムが分解する領域
- Q 水素化マグネシウムの平衡圧線

【書類名】

図面

【図1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 テトラヒドロホウ酸塩の製造方法において、製造コストを低く抑えること、また高い収率でテトラヒドロホウ酸塩の製造方法すること。

【解決手段】 原料であるホウ酸塩と、アルカリ土類金属例えばマグネシウムと、を含む例えば粉末状の混合物を、例えばコークス炉ガスを水素源とする水素雰囲気下において前記マグネシウムの水素化物が安定して存在する反応平衡圧（平衡圧線Q）よりも低い圧力で加熱して反応させる構成とする。この場合、マグネシウムの表面にのみ生成するプロタイド（ H^- ）を利用できるので、高い収率でテトラヒドロホウ酸塩を得ることができる。更に未反応のマグネシウムが少ないことから、結果として運転コストを低く抑えることができる。例えばニッケルなどの水素化金属触媒を混合してもよい。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 2 - 3 4 4 4 2 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [5 9 5 1 5 5 9 7 8]

1. 変更年月日 1 9 9 6 年 6 月 2 8 日
[変更理由] 住所変更
住 所 東京都新宿区西新宿一丁目 2 4 番 1 号
氏 名 株式会社水素エネルギー研究所
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 6 月 2 0 日
[変更理由] 住所変更
住 所 長野県茅野市北山 5 5 2 2 - イ - 8
氏 名 株式会社水素エネルギー研究所